

PCT

世界知的所有権機関
国際事務局
特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類7 C08L 23/10, 23/16, C08K 3/34 // (C08L 23/10, 23:08)		A1	(11) 国際公開番号 WO00/53673
			(43) 国際公開日 2000年9月14日(14.09.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/01386			山田哲史(YAMADA, Tetsushi)[JP/JP]
(22) 国際出願日 2000年3月8日(08.03.00)			小田哲也(ODA, Tetsuya)[JP/JP] 〒351-0113 埼玉県和光市中央一丁目4番1号
(30) 優先権データ 特願平11/63398 1999年3月10日(10.03.99)	JP		株式会社 本田技術研究所内 Saitama, (JP) (74) 代理人 弁理士 大谷 保(OHTANI, Tamotsu) 〒105-0001 東京都港区虎ノ門3丁目8番27号 巴町アネックス2号館4階 Tokyo, (JP)
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光石油化学会社 (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD.)[JP/JP] 〒108-0014 東京都港区芝五丁目6番1号 Tokyo, (JP)			(81) 指定国 BR, CN, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)
本田技研工業株式会社 (HONDA GIKEN KOGYO KABUSHIKI KAISHA)[JP/JP] 〒107-0062 東京都港区南青山二丁目1番1号 Tokyo, (JP)			添付公開書類 国際調査報告書
(72) 発明者 ; および (75) 発明者／出願人 (米国についてのみ) 友松龍蔵(TOMOMATSU Ryuzo)[JP/JP] 松尾陽一(MATSUO, Youichi)[JP/JP] 鳴川尚樹(NARUKAWA, Naoki)[JP/JP] 〒299-0107 千葉県市原市姉崎海岸1番地1 Chiba, (JP)			

(54)Title: PROPYLENE RESIN COMPOSITION AND INTERIOR AUTOMOTIVE MEMBER COMPRISING THE SAME

(54)発明の名称 プロピレン系樹脂組成物及びそれを用いた自動車用内装部材

(57) Abstract

A propylene resin composition comprising: (A) 60 to 90 wt. % propylene resin which (1) comprises 78 to 88 wt. % 23 °C p-xylene-insoluble component (a) and 12 to 22 wt. % 23 °C p-xylene-soluble component (b) and in which (2) the component (a) has an isotactic pentad content of 95 % or higher, a relaxation time τ as determined under specific conditions of 0.01 to 0.35 seconds, and a molecular weight distribution index (PDI) as determined under specific conditions of 1 to 18 and (3) the component (b) has an intrinsic viscosity $[\eta]$ of 3.3 dl/g or higher and an ethylene unit content of 43 wt. % or lower; (B) 0 to 10 wt. % rubbery elastomer; and (C) 10 to 30 wt. % talc. The resin composition is injection-molded to give an interior automotive member.

(57)要約

(A) (1) (イ) 23℃パラキシレン不溶分78~88重量%と、
 (ロ) 23℃パラキシレン可溶分12~22重量%とからなり、かつ
 (2) (イ) 成分が、アイソタクチックペントッド分率95%以上、
 特定条件での緩和時間 τ が0.01~0.35秒、特定条件での分子
 量分布指数(PDI)が1~1.8であり、さらに(3)(ロ)成分の
 極限粘度[η]が3.3d1/g以上、エチレン単位含有量が43重
 量%以下である、プロピレン系樹脂60~90重量%と、(B)ゴム
 状弾性体0~10重量%と、(C)タルク10~30重量%とを含有
 するプロピレン系樹脂組成物、並びに、この樹脂組成物を射出成形し
 てなる自動車用内装部材を提供する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	DM ドミニカ	KZ カザフスタン	RU ロシア
AG アンティグア・バーブーダ	DZ アルジェリア	LC セントルシア	SD スーダン
AL アルバニア	EE エストニア	LI リヒテンシュタイン	SE スウェーデン
AM アルメニア	ES スペイン	LK スリ・ランカ	SG シンガポール
AT オーストリア	FI フィンランド	LR リベリア	SI スロヴェニア
AU オーストラリア	FR フランス	LS レソト	SK スロvakia
AZ アゼルバイジャン	GA ガボン	LT リトアニア	SL シエラ・レオネ
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB 英国	LU ルクセンブルグ	SN セネガル
BB バルバドス	GD グレナダ	LV ラトヴィア	SZ スウェーデン
BE ベルギー	GE グルジア	MA モロッコ	TD チャード
BF ブルガリア・ファソ	GH ガーナ	MC モナコ	TG トーゴー
BG ブルガリア	GM ガンビア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BJ ベナン	GN ギニア	MG マダガスカル	TM トルクメニスタン
BR ブラジル	GR ギリシャ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR トルコ
BY ベラルーシ	GW ギニア・ビサオ	共和国	TT トリニダード・トバゴ
CA カナダ	HR クロアチア	ML マリ	TZ タンザニア
CF 中央アフリカ	HU ハンガリー	MN モンゴル	UA ウクライナ
CG コンゴ	ID インドネシア	MR モーリタニア	UG ウガンダ
CH スイス	IL インドネシア	MW マラウイ	US 米国
CI コートジボアール	IS イスラエル	MX メキシコ	UZ ウズベキスタン
CM カメルーン	IN インド	MZ モザンビーク	VN ベトナム
CN 中国	IT アイスランド	NE ニジエール	YU ユーゴスラヴィア
CR コスタ・リカ	JP 日本	NL オランダ	ZA 南アフリカ共和国
CU キューバ	KE ケニア	NO ノルウェー	ZW ジンバブエ
CY キプロス	KG キルギスタン	NZ ニュージーランド	
CZ チェコ	KP 北朝鮮	PL ポーランド	
DE ドイツ	KR 韓国	PT ポルトガル	
DK デンマーク		RO ルーマニア	

明細書

プロピレン系樹脂組成物及びそれを用いた自動車用内装部材

技術分野

本発明はプロピレン系樹脂組成物及びこれを用いた自動車用インストルメントパネル等の自動車用内装部材に関し、さらに詳しくは、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好であり、かつ耐衝撃性、剛性等の機械的性能に優れ、なおかつこれらのバランスが良好なプロピレン系樹脂組成物、及びこれを用いた自動車用内装部材に関するものである。

背景技術

近年、インストルメントパネル等の自動車用内装部材においては、製品のコストダウンを目的とした無塗装化の進展に伴い、ウエルド外観等における良好な外観性能を有するとともに、光の反射を抑制しつつ落ち着き感を付与するなどの効果がある低光沢性に優れる内装部品の要求が急速に高まっている。また同時に安全対策、材料の低コスト化への要求レベルも厳しくなり、さらにはインストルメントパネルに用いられる材料の統合化が進んでいることに対応し、全インストルメントパネルの仕様を包含しうる耐衝撃性、剛性バランスに優れた材料が求められている。

従来、自動車用内装部品の材料としては、安価な汎用樹脂であるプロピレン系樹脂が多用されており、プロピレン系樹脂の耐衝撃性（常温アイゾット衝撃強度）を向上させるために、スチレン系エストラマーを配合することが効果的であることが知られている。しかしながら、スチレン系エストラマーは高価である上、得られた成形

材料の光沢度が高いなどの問題がある。

また、耐低温衝撃性に優れた成形材料として、例えば結晶性プロピレン-エチレンブロック共重合体に、メタロセン系触媒を用いて得られたエチレン- α -オレフィン共重合体を配合した樹脂組成物（特開平7-145272号公報、特開平7-145298号公報）、プロピレン系樹脂に、ブテン-1単位含有量の比較的多いエチレン-ブテン-1共重合体（実質上メタロセン系触媒により得られたもの）を配合した樹脂組成物（特開平6-192506号公報、特開平7-18151号公報）、プロピレン系樹脂に、オクテン-1含有量の比較的多いエチレン-オクテン-1共重合体（実質上メタロセン系触媒により得られたもの）を配合した樹脂組成物（国際公開94-6859号）などが開示されている。しかしながら、これらの樹脂組成物では、耐低温衝撃性は良好であるものの、低光沢性に優れた成型品を製造するのが困難であるという問題があった。

このように、自動車用内装部品の材料となるプロピレン系樹脂組成物においては、その耐衝撃性、剛性等の機械的強度と、外観性能とは相反する性能であり、これらの性能のバランスは近年向上してきているものの充分なレベルには到達していなかった。

発明の開示

本発明は上記のような状況下でなされたものである。すなわち、本発明は、耐衝撃性、剛性等の機械的性能に優れ、かつウエルド外観、低光沢性等の外観性能も良好であり、なおかつ、外観性能と機械的性能のバランスを著しく向上しうるプロピレン系樹脂組成物を提供することを目的とし、また該組成物を射出成形してなる自動車用インストルメントパネル等の自動車用内装部材を提供することを目的とするものである。

本発明者らは銳意研究を重ねた結果、特定の性状を有するプロピレン系樹脂に、タルクと必要に応じゴム状弾性体を所定の割合で配合した樹脂組成物により、前記本発明の目的を達成することを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、前記の目的を達成するためになされた本発明のプロピレン系樹脂組成物は、(A) (1) (イ) 23°C パラキシレン不溶分 80 ~ 88 重量% と、(ロ) 23°C パラキシレン可溶分 12 ~ 22 重量% とからなり、かつ (2) (イ) 成分が、アイソタクチックペンタッド分率 95% 以上、溶液粘弹性測定から得られる角周波数 $\omega_{10}^0 / \text{sec}$ での緩和時間 τ が 0.01 ~ 0.35 秒、溶液粘弹性測定から得られる貯蔵弹性率 (G') が $2 \times 10^2 \text{ Pa}$ となるような角周波数を ω_1 、 $2 \times 10^4 \text{ Pa}$ となるような角周波数を ω_2 としたときの $\omega_2 / 10\omega_1$ で表される分子量分布指数 (PDI) が 1 ~ 1.8 であり、さらに (3) (ロ) 成分の極限粘度 [η] (135°C、デカリン中) が 3.3 dl/g 以上、エチレン単位含有量が 43 重量% 以下である、プロピレン系樹脂 60 ~ 90 重量% と、(B) ゴム状弾性体 0 ~ 10 重量% と、(C) タルク 10 ~ 30 重量% とからなる。

さらに、本発明の自動車用内装部材は、上記プロピレン系樹脂組成物を射出成形してなるものである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の樹脂組成物において、(A) 成分として用いられるプロピレン系樹脂は、以下に示す性状を有する。まず、23°C パラキシレンにより分別した場合、(イ) 不溶分量が 78 ~ 88 重量% で、(ロ) 可溶分量が 12 ~ 22 重量% である。不溶分量が 78 重量% 未満では成形品の耐衝撃性と剛性のバランスが不十分であり、88

重量%を越えると成型品のウエルド外観および低光沢性が不充分となる。なお、23°Cパラキシレンによる分別は、試料を130°Cのパラキシレンに完全溶解後、23°Cに冷却することにより溶解部分と非溶解部分に分別することにより行うことができる。

上記(イ)成分は、そのアイソタクチックペンタッド分率が95%以上であることが必要である。アイソタクチックペンタッド分率は、¹³C-NMRスペクトルにおいてメチル炭素領域のシグナルから求められる。本発明においてはアイソタクチックペンタッド分率が95%未満の場合、耐衝撃性と剛性のバランスが不充分なだけでなく、耐傷付性も不充分となる。これらの点に鑑みて、上記アイソタクチックペンタッド分率は、95%以上であることが好ましい。

また、上記(イ)成分は、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω が10°/secでの緩和時間 τ が0.01~0.35秒の範囲内、好ましくは0.05~0.30秒、特に好ましくは0.05~0.20秒の範囲内にある。緩和時間 τ が0.01秒未満では成型品の耐衝撃性と剛性のバランスが不充分であり、0.35秒を越えると成型品のウエルド外観および低光沢性が不充分となる。これらの点に鑑みて、上記緩和時間 τ が0.31~0.35秒の範囲内にあることが好ましい。なお、緩和時間 τ は測定機器としてレオメトリックス社製システム4〔回転型レオメーター、コーンプレート(25mmΦ)、コーンアングル: 0.1ラジアン〕を用い、温度175°Cにおいて角周波数 $\omega = 10^{\circ}/sec$ で正弦的な剪断歪みを加え、貯蔵弾性率G' と損失弾性率G'' とから、関係式=G'/ωG'' により算出した値である。

さらに、上記(イ)成分においては、溶融粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率(G')が2×10²Paとなるような角周波数を ω 、

、 2×10^4 Paとなるような角周波数を ω_2 としたとき、 $\omega_2 / 10\omega_1$ で表される分子量分布指数(PDI)が1～18、好ましくは5～15である。PDIが1未満では成型品の耐衝撃性と剛性のバランスが不充分であり、18を越えると成型品のウエルド外観および低光沢性が不充分となる。これらの点に鑑みて、上記PDIは1～18であることが好ましい。なお、上記PDIは、測定機器としてレオメトリックス社製システム4〔回転型レオメーター、コーンプレート(25mmφ)、コーンアングル:0.1ラジアン〕を用い、温度175°C、歪30%で測定を行い求めた値である。

本発明においては、上記(イ)成分の諸特性に加え、(ロ)成分のエチレン単位含有量が43重量%以下であることが必要である。エチレン単位含有量が43重量%を越えると耐衝撃性と剛性のバランスが不充分なだけでなく、耐傷付性も不充分となる。これらの点及びウエルド外観、低光沢性等外観性能と耐衝撃性、剛性等機械的性能のバランスから、上記エチレン単位含有量は40重量%以下、好ましくは20～40重量%以下、さらに33～39重量%であることが好ましい。

また、(ロ)成分の極限粘度[η](135°C、デカリニ中)は3.3dl/g以上、好ましくは3.5～4.0dl/gの範囲内である。極限粘度[η]が3.3dl/g未満では、成型品のウエルド外観および低光沢性が不充分となる。この点に鑑みて、極限粘度[η]は3.3dl/g以上であることが好ましい。また、4.0dl/gを超えると、溶融混練する際、凝集体が発生しやすくなる恐れがある。

上記(A)成分のプロピレン系樹脂は、温度230°C、荷重2.16kgf(21.2N)の条件で測定したメルトイインデックス(MI)が

1～100 g／10分の範囲にあることが好ましい。このM Iが1 g／10分未満では流動性が低くて成形性が悪く、100 g／10分を越えると成型品の耐衝撃性、剛性等の機械的性能が低下する。成形性および機械的性能のバランスの面から、上記M Iは5～70 g／10分、特に8～40 g／10分の範囲であることが好ましい。なお、このM IはJ I S K 7 2 1 0に準拠して求めた値である。

上記(A)成分のプロピレン系樹脂の製造方法については、前記要件を満たすプロピレン系樹脂を得ることができる方法であればいかなる方法にも使用でき、特に制限されず、様々な方法が挙げられる。例えば、別々に重合して得られた各成分をブレンドする方法、あるいは次に示すように、

(a) (i) マグネシウム、チタン、ハロゲン原子及び電子供与体からなる固体触媒成分、及び必要に応じて用いられる(ii) 結晶性ポリオレフィンから構成される固体成分と、(b) 有機アルミニウム化合物と、通常用いられる(c) 電子供与性化合物とからなる触媒系の存在下、多段重合を行い、プロピレンーエチレンブロック共重合体を製造する方法などがある。

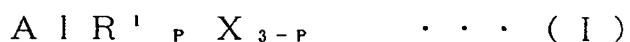
上記多段重合における触媒系において、(a) 固形成分は、(i) 成分のマグネシウム、チタン、ハロゲン原子及び電子供与体からなる固体触媒成分と、必要に応じて用いられる(ii) 結晶性ポリオレフィンから構成されている。該(i) 固体触媒成分は、マグネシウム化合物とチタン化合物と電子供与体とを接触させることによって調製することができる。なおこの場合、ハロゲン原子は、ハロゲン化物としてマグネシウム化合物及び／又はチタン化合物などに含まれる。

マグネシウム化合物として、金属マグネシウムとハロゲン及び／又はハロゲン含有化合物とアルコールとの反応生成物を用いることもできる。また、チタン化合物としては、公知のチタン化合物を用いることができるが、高ハロゲン含有チタン化合物、特に四塩化チタンが好適である。チタン化合物は一種だけで用いても良く、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

電子供与体としては、後で（c）成分の電子供与性化合物として例示するものを用いることができる。該（i）固体触媒成分の調製は、公知の方法（特開昭53-43094号公報、特開昭55-135102号公報、特開昭55-135103号公報、特開昭56-18606号公報、特開昭56-166205号公報、特開昭57-63309号公報、特開昭57-190004号公報、特開昭57-300407号公報、特開昭58-47003号公報）を用いて行うことができる。

また、（a）固体成分の調製において必要に応じて用いられる（ii）成分の結晶性ポリオレフィンとしては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、ポリ4-メチル-1-ペンテンなどの炭素数2～10の α -オレフィンから得られる結晶性ポリオレフィンが挙げられる。この結晶性ポリオレフィンは、前記（i）固体触媒成分と有機アルミニウム化合物と必要に応じて用いられる電子供与性化合物とを組み合わせたものの存在下に、プロピレンを予備重合させる方法（予備重合法）等、公知の方法により得ることができる。

次に、（b）成分として用いられる有機アルミニウム化合物としては、一般式（I）



[式中、R'は炭素数3～20のアルキル基又は炭素数6～20の

アリール基、Xはハロゲン原子、Pは1～3の数を示す。)で表される化合物を挙げることができる。

さらに、該触媒には、通常(c)成分として電子供与性化合物が用いられる。この電子供与性化合物は、酸素、窒素、リン、イオウ、ケイ素などを含有する化合物であり、基本的にはプロピレンの重合において、規則性の向上性能を有するものが考えられる。このような電子供与性化合物としては、例えば、有機ケイ素化合物、エステル類、ケトン類、エーテル類、チオエーテル類、酸無水物、酸ハイド類が好ましく用いられる。

以上、チーグラー系の固体触媒を用いる場合について、詳しく述べたが、触媒としては近年注目されているメタロセン系の触媒を用いることもできる。本発明において、(A)成分として用いるプロピレン系樹脂は、各種の方法で得ることができると、例えば前記した触媒系の存在下、多段重合によって製造することができる。多段重合における重合順序、及び重合段数は必要に応じ任意に選択することができる。例えば、最初の重合(第一段重合)は結晶性プロピレン系重合体が得られるようにプロピレンの単独重合又は共重合(2重量%以下のエチレンや他のオレフィンを含有する)を行い、第二段以降でエチレンとプロピレンとのランダム共重合やエチレンとプロピレンと他の α -オレフィンやポリエンとのランダム共重合を行うことができる。

重合に際しては、触媒系を構成する各成分、すなわち(a)～(c)成分を所定の割合で混合し、接触させたのち、ただちにモノマーを導入し、重合を開始してもよいし、接触後0.2～3時間程度熟成させたのちモノマーを導入してもよい。重合後の後処理は常法により行うことができる。本発明の樹脂組成物においては、この(

A) 成分のプロピレン系樹脂は一種用いても良く、二種以上を組み合わせて用いててもよい。

本発明のプロピレン系樹脂組成物には、(B) 成分としてゴム状弾性体が用いられる。このゴム状弾性体としては、ポリブタジエン、スチレン-ブタジエン共重合体、アクリルニトリル-ブタジエン共重合体、ポリイソブレン等共役ジエン系化合物の重合体、エチレン-プロピレンランダム共重合体(エチレン・プロピレンラバー)、エチレン- α -オレフィン(炭素数4~10)ランダム共重合体を挙げることができる。特に、エチレン-プロピレンランダム共重合体(エチレン・プロピレンラバー)、エチレンと1-オクテンをランダム共重合して得られる二元共重合ゴムを好適に用いることができる。

更に、本発明の樹脂組成物においては、(B) 成分として、メタロセン系触媒で重合したエチレン-炭素数3~18の α -オレフィン共重合体が用いられる。このエチレン- α -オレフィン共重合体の密度は、0.850~0.875 g/cm³の範囲である。この密度が0.850 g/cm³未満では成形品の剛性が不充分となり、0.875 g/cm³を超えると耐衝撃性の改良効果が充分に発揮されない。剛性及び耐衝撃性などの面から、特に好ましい密度は、0.855~0.870 g/cm³の範囲である。また、メルトイインデックス(MI)は0.01~25 g/10分の範囲である。このMIが0.01 g/10分未満では耐衝撃性の改良効果が充分に発揮されず、またフローマークが発生するおそれがあり、25 g/10分を超えるとシボ面での低光沢性及び耐衝撃性が不充分となるおそれがある。耐衝撃性、低光沢性及び成形性などの面から、好ましMIは0.01~6 g/10分の範囲であり、特に0.01~1 g/10分の範囲が

好適である。なお、このM Iは、温度190°C，荷重2.16gkg
f(21.2N)の条件で測定した値である。

この共重合体のコモノマーとして用いられる炭素数3～18の α -オレフィンとしては、例えばブテンー1；ペンテンー1；ヘキセンー1；オクテンー1；ノネンー1；デセンー1；ドデセンー1などの直鎖状 α -オレフィン、3-メチルブテンー1；4-メチルペンテンー1などの分岐状 α -オレフィンが挙げられるが、これらの中で、特に炭素数4～10の直鎖状 α -オレフィンが好ましい。これらの α -オレフィンは単独で用いてもよく、二種以上を組み合わせて用いてもよい。また、ジエン成分、例えばジシクロペニタジエン；エチリデンノルボルネン；1,4-ヘキサジエン；1,9-デカジエン；ビニルノルボルネンなどを併用してもよい。

前記(B)成分のエチレン- α -オレフィン共重合体としては、例えば、ダウ・ケミカル日本(株)から販売されているENGAGE〔ザ・ダウ・ケミカル・カンパニー商標〕POEsがあり、これらの中から選択して用いることができる。

また(C)成分としてタルクが用いられる。このタルクの大きさとしては、得られる成形品の剛性、耐衝撃性、耐傷付き白化性、ウエルド外観、光沢ムラなどの物性等の点から、平均粒径1～8μmで、平均アスペクト比が4以上のものが好適である。特に加工粉碎法により得られたものが、物性、剛性などの点でとりわけ好ましい。

本発明のプロピレン系樹脂組成物における各成分の含有割合は、(A)成分のプロピレン系樹脂が60～90重量%、(B)成分のゴム状弾性体が0～10重量%以下、(C)成分のタルクが10～30重量%である。(A)成分の含有量が60重量%未満では成形

品のウエルド外観やシボ面での低光沢性が不充分であり、またフローマークが発生するなど成形性が悪く、90重量%を越えると耐衝撃性が低下する。また、(B)成分の含有量は好ましくは0～7重量%、特に好ましくは0～3重量%以下である。上記範囲を越えると成形品のウエルド外観や低光沢性が不充分である。(C)成分の含有量が10重量%未満では、インストルメントパネル等の成形品の寸法精度および剛性が不足し、30重量%を越えると成形性および成形品のウエルド外観が不充分である。

本発明のプロピレン系樹脂組成物においては、必要に応じ、顔料、核剤、耐候剤、酸化防止剤、耐電防止剤、難燃剤、分散剤など公知の添加剤を配合することができる。本発明のプロピレン系樹脂組成物の調製方法については特に制限はなく、例えば前記(A)成分、(C)成分及び必要に応じて用いられる(B)成分や他の添加成分を、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、ニーダ、ロールなどを用いて溶融混練する方法等を採用できる。

本発明の自動車用内装部材は、このようにして得られたプロピレン系樹脂組成物を、射出圧縮成形法、ガス注入射出成形法などの公知の射出成形法を用いて成形することにより得ることができる。本発明において自動車用内装部材としては、例えばインストルメントパネル、ドアトリム、コンソールボックスなどがある。

次に、本発明を実施例によりさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら限定されるものではない。なお成形品の物性は以下に示す方法により求めた。

(1) メルトイインデックス (M I)

プロピレン系樹脂組成物、プロピレン系重合体について、JIS K 7210に準拠して求めた。

(2) アイゾット (IZOD) 衝撃強度

テストピース成形品について、JIS K 7110に準拠して求めた。

(3) 曲げ弾性率

テストピース成形品について、JIS K 7203に準拠して求めた。

(4) ウエルド外観

テストピース成形品について、裏面の平面を目視評価した。ウエルド部が殆ど識別できない場合を◎、ウエルド部が若干識別できるが、実用上問題ないレベルを○、ウエルド部が若干目立ち、実用上問題あるレベルを△、ウエルド部が目立つ場合を×とした。

(5) 低光沢性

テストピース成形品について、JIS K 7105に準拠して求めた。

(6) アイソタクチックペンタッド分率

試料 220 g を 10 φ の NMR 試料管に投入し、1, 2, 4 ト リクロロベンゼン / 重ベンゼン (90 / 10 容量 %) 3 ミリリットルを加えて、140 °C で均一に溶解させた後、次の条件で ^{13}C - NMR を測定した。周波数 : 45 MHz、スペクトル幅 : 25000 Hz、測定温度 : 130 °C、パルス幅 : 8 μ秒、パルス繰り返し時間 : 4 秒、積算回数 : 10000 回。

また、プロピレン系樹脂の性状は、明細書本文に記載した方法に従って測定した。

1. プロピレンブロック共重合体 (PP-1) の製造

(1) マグネシウム化合物の調製

内容積 500 リットルの攪拌翼付き付きのガラス製反応器を窒素

ガスで充分に置換した後、エタノール 97.2 kg、ヨウ素 640 g 及び金属マグネシウム 6.4 kg を投入し、攪拌しながら環流条件下で反応させ、固体状反応生成物を得た。この固体状反応生成物を含む反応液を減圧下で乾燥させることにより、マグネシウム化合物（固体生成物）を得た。

（2）固体触媒成分の調製

窒素ガスで充分に置換した内容積 500 リットルのガラス製三つ口フラスコに、上記（1）で得られたマグネシウム化合物（粉碎していないもの）30 kg、精製ヘプタン 150 リットル、四塩化珪素 4.5 リットル及びフタル酸ジ-n-ブチル 4.3 リットル加えた。系内を 90 °C に保ち、攪拌しながら四塩化チタン 144 リットルを投入して、110 °C で 2 時間反応させたのち、固体成分を分離して 80 °C の精製ヘプタンで洗浄した。さらに、四塩化チタン 228 リットルを加え、110 °C で 2 時間反応させたのち、精製ヘプタンで充分に洗浄し、固体触媒成分を得た。

（3）重合前処理

内容積 500 リットルの攪拌翼付き反応槽に、精製 n-ヘプタン 230 リットルを投入し、さらに、前記（2）で得られた固体触媒成分 25 kg を加え、次いで、この固体触媒成分中の Ti 1 モルに対し、トリエチルアルミニウムを 0.6 モル及びジシクロペンチルジメトキシシランを 0.4 モルの割合で加えた後、プロピレンをプロピレン分圧で 0.3 kg/cm² G になるまで導入し、20 °C で 4 時間反応させた。反応終了後、固体触媒成分を n-ヘプタンで数回洗浄し、二酸化炭素を供給し 24 時間攪拌した。

（4）重合によるプロピレンブロック共重合体（PP-I）の製造

まず、前段として内容積 200 リットルの攪拌翼付き重合槽（第

一重合槽)に、上記(3)の処理済の固体触媒成分をTi原子に換算して0.6ミリモル/hrで、トリエチルアルミニウムを4.0ミリモル/kg-PPで、ジシクロペンチルジメトキシシランを0.4ミリモル/kg-PPでそれぞれ供給し、重合温度85°C、重合圧力(全圧)28kg/cm²Gでプロピレンを反応させた。この時、所望のエチレン含有量及び分子量になるようにエチレン供給量及び水素供給量を調整した。

次に、第一重合槽から連続的にパウダーを抜き出し、内容積200リットルの攪拌翼付き重合槽(第二重合槽)に移送した。第二重合槽では、重合温度70°C、重合圧力(全圧)15kg/cm²Gにて運転し、所望の組成及び分子量になるようにプロピレン、エチレン及び水素供給量比を調製した。連続的に抜き出したパウダーを造粒し、プロピレンブロック共重合体(PP-1)を得た。

2. プロピレンブロック共重合体(PP-2)～(PP-6)の製造

上記1.のPP-1において、下記第1表に示す配合とする以外は、上記1.のPP-1の製造方法に準じてプロピレンブロック共重合体(PP-2)～(PP-6)を得た。

実施例1～4及び比較例1～5

第1表-1及び2に示す性状と量((A)～(C)成分は、(A)～(C)成分の合計量を100重量%としたときの各成分の重量%を示し、(イ)及び(ロ)成分は、(イ)及び(ロ)成分の合計量を100重量%としたときの各成分の重量%を示す。)の(A)プロピレン系樹脂、(B)ゴム状弾性体、(C)タルクの合計量100重量部に対し、ダークグレー顔料(大日精化社製、商品名:PP-DHH7343)1.0重量部を配合し、二軸混練機で混練し

て成形材料を調製したのち、射出成形機により樹脂温度220℃で成形して、テストピース（140×140×3mmの内装用シボ付き板）を作成し、物性及び外観性能を評価した。結果を第1表-1に示す。

第1表-1

	プロピレン系樹脂										
	種類	重量%	(イ) 23℃ パラキシレン不溶分				(ロ) 23℃ パラキシレン可溶分			M I	
			重量%	アイソタクチック ベンタック 分率(%)	τ 秒	PDI	重量%	エチレン 含有量 (重量%)	極限粘度 [η] (dl/g)		
実施例	1 PP-1	75	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9	
	2 PP-1	73	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9	
	3 PP-1	69	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9	
	4 PP-1	83	83	97.3	0.12	10	17	37	3.8	9	
比較例	1 PP-2	73	83	97.6	0.14	10	17	48	3.8	9	
	2 PP-3	73	84	97.7	0.11	10	16	37	2.8	14	
	3 PP-4	73	83	97.5	0.14	10	17	47	2.9	13	
	4 PP-5	73	83	97.7	0.14	10	17	56	2.1	11	
	5 PP-6	73	90	97.3	0.11	10	10	42	2.9	12	

第1表-2

		(B) ゴム状 弾性体		(C) タルク	テストピース物性			テストピース 外観性能	
		種類	重量 %	重量 %	M I (g/10 分)	I Z O D 衝撃強度 (kJ/m ²)	曲げ弾 性率 (MPa)	ウエル ド外観	低光沢性 (%)
実 施 例	1	メタロセン LL	2	23	13	32	2980	◎	2.1
	2	メタロセン LL	4	23	11	58	2660	○～◎	2.1
	3	メタロセン LL	8	23	8	NB	2460	○	2.2
	4	メタロセン LL	2	15	12	46	2300	◎	2.1
比 較 例	1	メタロセン LL	4	23	10	28	2740	◎	2.1
	2	メタロセン LL	4	23	14	33	2650	△	2.4
	3	メタロセン LL	4	23	14	26	2730	△～○	2.2
	4	メタロセン LL	4	23	12	NB	2530	×	2.9
	5	メタロセン LL	4	23	13	22	2950	×	2.5

(注)

メタロセンLL：(EG-8100、ザ・ダウ・ケミカル・カンパニイー)

タルク：浅田製粉社製、商品名：JM209、平均粒径(4.2)μm (レーザー式粒度分析計で測定 [島津製作所 SALD2000A])

産業上の利用可能性

本発明のプロピレン系樹脂組成物は、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好で、耐衝撃性、剛性の機械的性能に優れており、外観性能と機械的性能という相反する性能をお互いに損なうことな

くバランスよく向上している。また、この樹脂組成物は、無塗装化が可能でコストダウンを図ることができ、自動車用内装部材の成形材料として最適である。

本発明の樹脂組成物から得られた自動車用内装部材は、ウエルド外観、低光沢性等の外観性能が良好で、無塗装化が可能でコストダウンを図ることができ、耐衝撃性、剛性の機械的性能に優れており、外観性能と機械的性能という相反する性能をお互いに損なうことなくバランスよく向上している。このため、例えばインストルメントパネル等の自動車用内装部材として最適である。

請求の範囲

1. (A) (1) (イ) 23°C パラキシレン不溶分 78~88 重量%と、(ロ) 23°C パラキシレン可溶分 12~22 重量%とからなり、かつ (2) (イ) 成分が、アイソタクチックペントッド分率 95%以上、溶液粘弾性測定から得られる角周波数 ω 10⁰ / sec での緩和時間 τ が 0.01~0.35 秒、溶液粘弾性測定から得られる貯蔵弾性率 (G') が 2×10^2 Pa となるような角周波数を ω_1 、 2×10^4 Pa となるような角周波数を ω_2 としたときの $\omega_2 / 10\omega_1$ で表される分子量分布指数 (PDI) が 1~18 であり、さらに (3) (ロ) 成分の極限粘度 [η] (135°C、デカリ中) が 3.3 dl/g 以上、エチレン単位含有量が 43 重量%以下である、プロピレン系樹脂 60~90 重量%と、(B) ゴム状弹性体 0~10 重量%と、(C) タルク 10~30 重量%とを含有するプロピレン系樹脂組成物。

2. (ロ) 成分のエチレン単位含有量が 33~39 重量%である請求項 1 記載のプロピレン系樹脂組成物。

3. 請求項 1 又は 2 に記載のプロピレン系樹脂組成物を射出成形してなる自動車用内装部材。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01386

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷, C08L 23/10, C08L 23/16, C08K 3/34// (C08L 23/10, C08L 23/08)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷, C08L 23/00-23/36

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 9-71691, A (Idemitsu Petrochem Co., Ltd.), 18 March, 1997 (18.03.97), Claims; Par. Nos. 0001, 0030 (Family: none)	1-3
PX	JP, 11-71431, A (Idemitsu Petrochem Co., Ltd.), 16 March, 1999 (16.03.99), Claims; Par. No. 0001 (Family: none)	1-3
A	JP, 10-45971, A (TOSOH CORPORATION), 17 February, 1998 (17.02.98), Claims (Family: none)	1-3
A	US, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd), 12 November, 1996 (12.11.96), Claims & JP, 7-314490, A	1-3
A	WO, 97/49765, A (Idemitsu Petrochem Co., Ltd.), 31 December, 1997 (31.12.97), Claims & JP, 10-7851, A & EP, 908492, A1 & US, 6034165, A	1-3

 Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

- * Special categories of cited documents:
- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

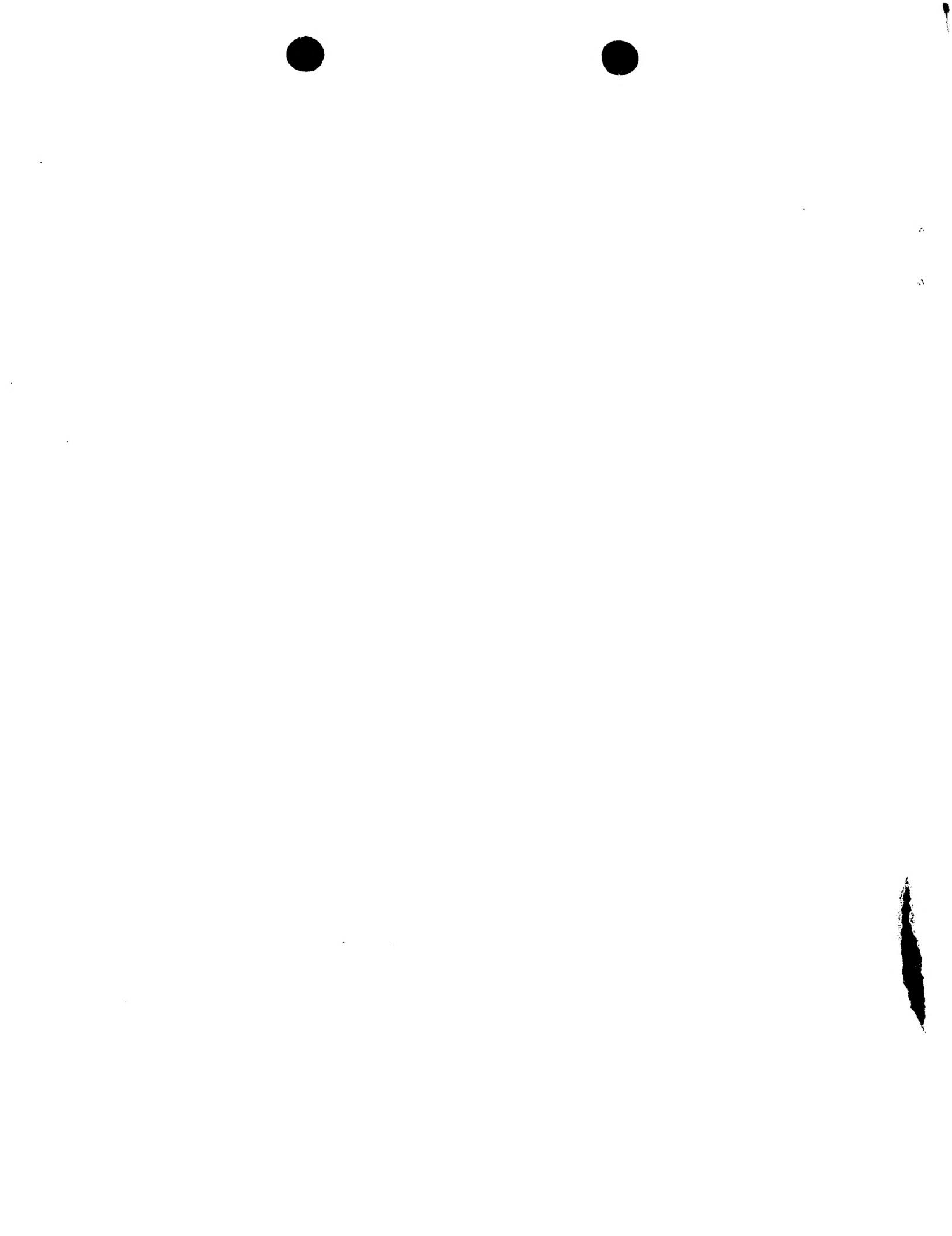
- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
08 May, 2000 (08.05.00)Date of mailing of the international search report
16.05.00Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.



A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））
Int. C1', C08L 23/10, C08L 23/16, C08K 3/34// (C08L 23/10, C08L 23/08)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））
Int. C1', C08L 23/00-23/36

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2000年
日本国実用新案登録公報 1996-2000年
日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 9-71691, A (出光石油化学株式会社) 18. 3月. 1997 (18. 03. 97) 特許請求の範囲、0 001, 0030段落 (ファミリーなし)	1-3
P X	J P, 11-71431, A (出光石油化学株式会社) 16. 3月. 1999 (16. 03. 99) 特許請求の範囲、0 001段落 (ファミリーなし)	1-3

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 05. 00

国際調査報告の発送日

16.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

小出 直也

印

4 J 9640

電話番号 03-3581-1101 内線 3493

C (続き) 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 10-45971, A (東ソー株式会社) 17. 2月. 1998 (17. 02. 98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-3
A	U S, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd) 12. 11月. 1996 (12. 11. 96) 特許請求の範囲 & J P, 7-314490, A	1-3
A	W O, 97/49765, A (出光石油化学株式会社) 31. 12月. 1997 (31. 12. 97) 特許請求の範囲 & J P, 10-7851, A&E P, 908492, A1&U S, 6034165, A	1-3

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int. Cl⁷, C08L 23/10, C08L 23/16, C08K 3/34// (C08L 23/10, C08L 23/08)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int. Cl⁷, C08L 23/00-23/36

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 9-71691, A (出光石油化学株式会社) 18. 3月. 1997 (18. 03. 97) 特許請求の範囲、 0 001, 0030段落 (ファミリーなし)	1-3
P X	J P, 11-71431, A (出光石油化学株式会社) 16. 3月. 1999 (16. 03. 99) 特許請求の範囲、 0 001段落 (ファミリーなし)	1-3

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 05. 00

国際調査報告の発送日

16.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

小出 直也

4 J 9640



電話番号 03-3581-1101 内線 3493

THIS PAGE BLANK (USPTO)

C (続き) 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 10-45971, A (東ソー株式会社) 17. 2月. 1998 (17. 02. 98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-3
A	U S, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd) 12. 11月. 1996 (12. 11. 96) 特許請求の範囲 & J P, 7-314490, A	1-3
A	WO, 97/49765, A (出光石油化学株式会社) 31. 12月. 1997 (31. 12. 97) 特許請求の範囲 & J P, 10-7851, A&E P, 908492, A1&U S, 6034165, A	1-3

THIS PAGE BLANK (USPTO)

特許協力条約

PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 F I - 3 0 0	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/01386	国際出願日 (日.月.年) 08.03.00	優先日 (日.月.年) 10.03.99
出願人(氏名又は名称) 出光石油化学株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。 この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
 この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
 この国際出願に含まれる書面による配列表 この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。2. 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。3. 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。4. 発明の名称は 出願人が提出したものと承認する。 次に示すように国際調査機関が作成した。5. 要約は 出願人が提出したものと承認する。 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。6. 要約書とともに公表される図は、
第 _____ 図とする。 出願人が示したとおりである. なし 出願人は図を示さなかった。 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

第III欄 要約（第1ページの5の続き）

(A) (1) (イ) 23°Cパラキシレン不溶分78~88重量%と、
(ロ) 23°Cパラキシレン可溶分12~22重量%とからなり、かつ
(2) (イ) 成分が、アイソタクチックペントッド分率95%以上、
特定条件での緩和時間 τ が0.01~0.35秒、特定条件での分子
量分布指数(PDI)が1~18であり、さらに(3)(ロ)成分の
極限粘度[η]が3.3d1/g以上、エチレン単位含有量が43重
量%以下である、プロピレン系樹脂60~90重量%と、(B)ゴム
状弾性体0~10重量%と、(C)タルク10~30重量%とを含有
するプロピレン系樹脂組成物、並びに、この樹脂組成物を射出成形し
てなる自動車用内装部材を提供する。

THIS PAGE BLANK (USPTO)



P.B.5818 – Patentlaan 2
2280 HV Rijswijk (ZH)
+31 70 340 2040
TX 31651 epo nl
FAX +31 70 340 3016

**Europäisches
Patentamt**

Zweigstelle
in Den Haag
Recherchen-
abteilung

**European
Patent Office**

Branch at
The Hague
Search
division

**Office européen
des brevets**

Département à
La Haye
Division de la
recherche

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos
Patentanwälte
Brucknerstrasse 20
40593 Düsseldorf
ALLEMAGNE

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos	
Eingang am:	11. März 2002
Frist:	
Vorfrist	

Datum/Date
11.03.02

Zeichen/Ref./Réf.

T61 241 - mai

Anmeldung Nr./Application No./Demande n°./Patent Nr./Patent No./Brevet n°.

00907934.4-1220-JP0001386

Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprietor/Titulaire

IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD., et al

COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits as an enclosure the European search report for the above-mentioned European patent application.

If applicable, copies of the documents cited in the European search report are attached.

Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well.

REFUND OF THE SEARCH FEE

If applicable under Article 10 Rules relating to fees, a separate communication from the Receiving Section on the refund of the search fee will be sent later.



THIS PAGE BLANK (USPTO)



European Patent
Office

SUPPLEMENTARY
EUROPEAN SEARCH REPORT

Application Number

EP 00 90 7934

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.7)
X	WO 97 49765 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO ;ISHII TOSHIYUKI (JP); NARA TOSHIHIDE (J) 31 December 1997 (1997-12-31) * the whole document ; and see family document EP0908492 abstract ; claims 1-5 ; page 3, line 4 - page 6, line 29 ; tables *	1-3	C08L23/10 C08L23/16 C08K3/34 C08L53/02 //C08L23:10, C08L23:08
X	WO 98 47858 A (SCHELLENBERG KARL A ;SHAEFFER JAMES (US); EASTERN VIRGINIA MEDICAL) 29 October 1998 (1998-10-29) * the whole document ; and see family document EP0916701 abstract ; claims 11, 1, 2, 3, 12-14 ; page 6, line 36-55 (particularly lines 49-50); page 5, line 9 -page 8, line 47 ; page 21, line 30-33*	1-3	
P, X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 08, 30 June 1999 (1999-06-30) & JP 11 071431 A (IDEMITSU PETROCHEM CO LTD), 16 March 1999 (1999-03-16) * abstract *	1-3	
X	EP 0 636 650 A (MITSUI PETROCHEMICAL IND) 1 February 1995 (1995-02-01) * claim 3 ; page 19, line 25-26 * * claim 6 *	1-3	C08L C08K
Y	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1997, no. 07, 31 July 1997 (1997-07-31) & JP 09 071691 A (IDEMITSU PETROCHEM CO LTD), 18 March 1997 (1997-03-18) * abstract *	1-3	
The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			

EPO FORM 1503 03 82 (P04C04)

Place of search

THE HAGUE

Date of completion of the search

1 March 2002

Examiner

Hammond, A

CATEGORY OF CITED DOCUMENTS

- X : particularly relevant if taken alone
- Y : particularly relevant if combined with another document of the same category
- A : technological background
- O : non-written disclosure
- P : intermediate document

T : theory or principle underlying the invention

E : earlier patent document, but published on, or after the filing date

D : document cited in the application

L : document cited for other reasons

& : member of the same patent family, corresponding document

THIS PAGE BLANK (USPTO)



European Patent
Office

SUPPLEMENTARY
EUROPEAN SEARCH REPORT

Application Number

EP 00 90 7934

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.Cl.7)
Y	EP 0 316 693 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 24 May 1989 (1989-05-24) * claims 1-8 *	1-3	
A	EP 0 825 228 A (IDEMITSU PETROCHEMICAL CO) 25 February 1998 (1998-02-25) * abstract * * page 9, line 28-43 *	1-3	
A	WO 94 06859 A (BETSO STEPHEN R ;DOW CHEMICAL CO (US); FISKE THOMAS R (US); MURRAY) 31 March 1994 (1994-03-31) * claims 1-14 *	1-3	
A	US 5 574 087 A (KOBAYASHI YUTAKA ET AL) 12 November 1996 (1996-11-12) * the whole document *	1-3	

ISN			
TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.Cl.7)			

The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			

1

EPO FORM 1503.03.02 (P04C04)

Place of search	Date of completion of the search	Examiner
THE HAGUE	1 March 2002	Hammond, A
CATEGORY OF CITED DOCUMENTS		
X : particularly relevant if taken alone	T : theory or principle underlying the invention	
Y : particularly relevant if combined with another document of the same category	E : earlier patent document, but published on, or after the filing date	
A : technological background	D : document cited in the application	
O : non-written disclosure	L : document cited for other reasons	
P : intermediate document	& : member of the same patent family, corresponding document	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 00 90 7934

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report. The members are as contained in the European Patent Office EDP file on. The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

01-03-2002

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 9749765	A	31-12-1997	JP EP WO US	10007851 A 0908492 A1 9749765 A1 <u>6034165</u> A	13-01-1998 14-04-1999 31-12-1997 07-03-2000
WO 9847858	A	29-10-1998	US AU WO	6020373 A 7158298 A 9847858 A1	01-02-2000 13-11-1998 29-10-1998
JP 11071431	A	16-03-1999	CN EP TW US	1176259 A 0825228 A2 440583 B <u>5985973</u> A	18-03-1998 25-02-1998 16-06-2001 16-11-1999
EP 0636650	A	01-02-1995	CA CN CN CN DE DE EP JP KR US KR KR	2128920 A1 1269380 A 1269381 A 1105680 A ,B 69401548 D1 69401548 T2 0636650 A1 7090143 A 149062 B1 5412020 A 149151 B1 149150 B1	29-01-1995 11-10-2000 11-10-2000 26-07-1995 06-03-1997 05-06-1997 01-02-1995 04-04-1995 15-10-1998 02-05-1995 15-10-1998 15-10-1998
JP 09071691	A	18-03-1997	NONE		
EP 0316693	A	24-05-1989	JP JP JP DE DE EP US	1126354 A 1956061 C 6039553 B 3852988 D1 3852988 T2 0316693 A2 4948841 A	18-05-1989 28-07-1995 25-05-1994 23-03-1995 14-06-1995 24-05-1989 14-08-1990
EP 0825228	A	25-02-1998	CN EP JP TW US	1176259 A 0825228 A2 11071431 A 440583 B <u>5985973</u> A	18-03-1998 25-02-1998 16-03-1999 16-06-2001 16-11-1999
WO 9406859	A	31-03-1994	CA DE DE	2142733 A1 69322871 D1 69322871 T2	31-03-1994 11-02-1999 12-05-1999

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 00 90 7934

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report.
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

01-03-2002

Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 9406859	A		EP 0660859 A1	05-07-1995
			EP 0877050 A2	11-11-1998
			ES 2126002 T3	16-03-1999
			FI 951192 A	14-03-1995
			JP 8501343 T	13-02-1996
			WO 9406859 A1	31-03-1994
			US 5576374 A	19-11-1996
			US 5681897 A	28-10-1997
			US 5688866 A	18-11-1997
			US 5925703 A	20-07-1999
			US 5856406 A	05-01-1999
US 5574087	A	12-11-1996	JP 7314490 A	05-12-1995

THIS PAGE BLANK (USPTO)



EPA/EPO/OEB
 D-80298 München
 +49 89 2399-0
 TX 523 656 epmu d
 FAX +49 89 2399-4465

Europäisches Patentamt

Generaldirektion 2

European Patent Office

Directorate General 2

Office européen des brevets

Direction Générale 2

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos
 Patentanwälte
 Brucknerstrasse 20
 40593 Düsseldorf
 ALLEMAGNE

Gille Hrabal Struck Neidlein Prop Roos	
Eingang am:	24. April 2003
Frist:	22.8.03
Vorfrist:	



Application No. 00 907 934.4-1220	Ref. T61 241 - mai	Date 22.04.2003
Applicant IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al.		

Communication pursuant to Article 96(2) EPC

The examination of the above-identified application has revealed that it does not meet the requirements of the European Patent Convention for the reasons enclosed herewith. If the deficiencies indicated are not rectified the application may be refused pursuant to Article 97(1) EPC.

You are invited to file your observations and insofar as the deficiencies are such as to be rectifiable, to correct the indicated deficiencies within a period

of 4 months

from the notification of this communication, this period being computed in accordance with Rules 78(2) and 83(2) and (4) EPC.

One set of amendments to the description, claims and drawings is to be filed within the said period on separate sheets (Rule 36(1) EPC).

Failure to comply with this invitation in due time will result in the application being deemed to be withdrawn (Article 96(3) EPC).



HAMMOND A B
 Primary Examiner
 for the Examining Division

Enclosure(s): 2 page/s reasons (Form 2906)

THIS PAGE BLANK (USPTO)



Bescheid/Protokoll (Anlage)	Communication/Minutes (Annex)	Notification/Procès-verbal (Annexe)
Datum Date Date 22.04.2003	Blatt Sheet Feuille 1	Anmelde-Nr.: Application No.: 00 907 934 . 4 Demande n°:

The examination is being carried out on the following application documents:

Text for the Contracting States:

DE FR GB

Description, pages:

1-16 as originally filed

Claims, No.:

1-3 as originally filed

1. The following documents D1-D2 are referred to in this communication ; the numbering will be adhered to in the rest of the procedure :

D1 WO9749765 (family document EP0908492 is presumed to be a good translation)
D2 WO9847959 (family document EP0916701 is presumed to be a good translation)

Article 54

2. The present application does not meet the requirements of Articles 52(1) EPC because the subject-matter of claims 1-3 is not novel in the sense of Article 54(1) and (2) EPC.

(a) The features of claim 1, that is a propylene-based resin composition comprising (A) 60 to 90% by weight of a propylene-based resin, (1) comprising 78 to 88% by weight of 23 C paraxylene insolubles (a) and 12 to 22% by weight of 23 C paraxylene insolubles (b), (2) the insolubles (a) having an isotactic pentad fraction of 95% or higher, a relaxation time (t) of 0.01 to 0.35 second at an angular frequency (w) of 10 degree/second when measured by melt viscoelastometry and a molecular weight distribution index of 1 to 18 which is expressed by $(w_2)/10(w_1)$ wherein (w1) is an angular frequency at which a storage modulus (G') as measured by melt viscoelastometry is $2 \times (10 \text{ to the power } 2) \text{ Pa}$ and (w2) is an angular frequency at

THIS PAGE BLANK (USPTO)



Bescheid/Protokoll (Anlage)	Communication/Minutes (Annex)	Notification/Procès-verbal (Annexe)
Datum Date Date 22.04.2003	Blatt Sheet Feuille 2	Anmelde-Nr.: Application No.: 00 907 934.4 Demande n°:

which a storage modulus (G') as measured by melt viscoelastometry is $2 \times (10$ to the power 4) Pa, and (3) the solubles (b) having an intrinsic viscosity in decalin of 3.3 dl/g or higher and an ethylene unit content of 43% by weight or smaller ; (B) 0 to 10% by weight of a rubber-like elastomer ; (C) 10 to 30% by weight of talc, are disclosed in D1 (EP0908492 : abstract ; claims 1-5 ; page 3, line 4 - page 6, line 29) ; D2 (EP0916701 : abstract ; claims 11, 1, 2, 3, 12-14 ; page 6, line 49-50 ; page 5, line 9 - page 8, line 47 ; page 21, line 26-33).

(b) The features of claim 2, that is a propylene-based resin composition according to claim 1, wherein the solubles (b) have an ethylene unit content of 33 to 39% by weight, are disclosed in D2 (EP0916701 references as 2(a), particularly page 6, line 49-50).

(c) The features of claim 3, that is an automotive interior trim produced by injection-molding the said propylene-based resin composition of claims 1 or 2, are disclosed in D1 (EP0908492 references as 2(a), particularly claim 5 ; page 2, line 5-9) ; D2 (EP0916701 references as 2(a), particularly page 21, line 26-33).

3. To meet the requirements of Rule 27(1)(b) EPC, the documents D1-D2 should be identified in the description and the relevant background art disclosed therein should be briefly discussed.

4. In order to facilitate the examination of the conformity of the amended application with the requirements of Article 123(2) EPC, the applicant is requested to clearly identify the amendments carried out, irrespective of whether they concern amendments by addition, replacement or deletion, and to indicate the passages of the application as filed on which these amendments are based.

If the applicant regards it as appropriate these indications could be submitted in handwritten form on a copy of the relevant parts of the application as filed.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

特許協力条約

PCT

E P

U

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
〔PCT18条、PCT規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 F I - 3 0 0	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/01386	国際出願日 (日.月.年) 08.03.00	優先日 (日.月.年) 10.03.99
出願人(氏名又は名称) 出光石油化学株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。

この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
 この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
 この国際出願に含まれる書面による配列表

この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は 出願人が提出したものと承認する。

次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は

出願人が提出したものと承認する。

第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 _____ 図とする。 出願人が示したとおりである。

なし

出願人は図を示さなかった。

本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

第III欄 要約（第1ページの5の続き）

(A) (1) (イ) 23°Cパラキシレン不溶分78~88重量%と、
(ロ) 23°Cパラキシレン可溶分12~22重量%とからなり、かつ
(2) (イ) 成分が、アイソタクチックペントッド分率95%以上、
特定条件での緩和時間 τ が0.01~0.35秒、特定条件での分子
量分布指数(PDI)が1~18であり、さらに(3) (ロ) 成分の
極限粘度[η]が3.3d1/g以上、エチレン単位含有量が43重
量%以下である、プロピレン系樹脂60~90重量%と、(B) ゴム
状弾性体0~10重量%と、(C) タルク10~30重量%とを含有
するプロピレン系樹脂組成物、並びに、この樹脂組成物を射出成形し
てなる自動車用内装部材を提供する。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl', C08L 23/10, C08L 23/16, C08K 3/34// (C08L 23/10, C08L 23/08)

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl', C08L 23/00-23/36

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 9-71691, A (出光石油化学株式会社) 18. 3月. 1997 (18. 03. 97) 特許請求の範囲、0 001, 0030段落 (ファミリーなし)	1-3
PX	J P, 11-71431, A (出光石油化学株式会社) 16. 3月. 1999 (16. 03. 99) 特許請求の範囲、0 001段落 (ファミリーなし)	1-3

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 05. 00

国際調査報告の発送日

16.05.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

小出 直也

4 J 9640



電話番号 03-3581-1101 内線 3493

THIS PAGE BLANK (USPTO)

C(続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
A	JP, 10-45971, A (東ソー株式会社) 17. 2月. 1998 (17. 02. 98) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-3
A	US, 5574087, A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd) 12. 11月. 1996 (12. 11. 96) 特許請求の範囲 & JP, 7-314490, A	1-3
A	WO, 97/49765, A (出光石油化学株式会社) 31. 12月. 1997 (31. 12. 97) 特許請求の範囲 & JP, 10-7851, A&EP, 908492, A1&U S, 6034165, A	1-3

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PENT COOPERATION TREA

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

**NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT**

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

Date of mailing (day/month/year)
18 May 2000 (18.05.00)

To:

OHTANI, Tamotsu
Tomoe-cho Annex-II, 4F
8-27, Toranomon 3-chome
Minato-ku
Tokyo 105-0001
JAPON

Applicant's or agent's file reference
FI-300

IMPORTANT NOTIFICATION

International application No.
PCT/JP00/01386

International filing date (day/month/year)
03 March 2000 (03.03.00)

International publication date (day/month/year)
Not yet published

Priority date (day/month/year)
10 March 1999 (10.03.99)

Applicant

IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority datePriority application No.Country or regional Office
or PCT receiving OfficeDate of receipt
of priority document

10 Marc 1999 (10.03.99) 11/63398

JP

28 Apri 2000 (28.04.00)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Marc Salzman

Telephone No. (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OHTANI, Tamotsu
Tomoe-cho Annex-II, 4F
8-27, Toranomon 3-chome,
Minato-ku
Tokyo 105-0001.
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 14 September 2000 (14.09.00)		
Applicant's or agent's file reference FI-300	IMPORTANT NOTICE	
International application No. PCT/JP00/01386	International filing date (day/month/year) 08 March 2000 (08.03.00)	Priority date (day/month/year) 10 March 1999 (10.03.99)
Applicant IDEMITSU PETROCHEMICAL CO., LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

BR,CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on
14 September 2000 (14.09.00) under No. WO 00/53673

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a **demand for international preliminary examination** must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

THIS PAGE BLANK (USPTO)